

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日                      2 0 0 3 年    9 月 1 8 日  
Date of Application:

出 願 番 号                      特 願 2 0 0 3 - 3 2 5 4 0 2  
Application Number:  
[ST. 10/C] :                      [ J P 2 0 0 3 - 3 2 5 4 0 2 ]

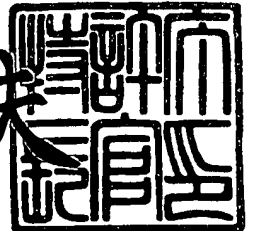
願                      人                      日 本 碍 子 株 式 有 限 公 司  
Applicant(s):

CERTIFIED COPY OF  
PRIORITY DOCUMENT

2 0 0 4 年    4 月 2 8 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康 夫



【書類名】 特許願  
【整理番号】 WP04492  
【提出日】 平成15年 9月18日  
【あて先】 特許庁長官 今井 康夫 殿  
【国際特許分類】 F27B  
【発明者】  
    【住所又は居所】 愛知県名古屋市瑞穂区須田町 2 番 5 6 号 日本碍子株式会社内  
    【氏名】 蔵島 吉彦  
【発明者】  
    【住所又は居所】 愛知県名古屋市瑞穂区須田町 2 番 5 6 号 日本碍子株式会社内  
    【氏名】 半澤 茂  
【発明者】  
    【住所又は居所】 愛知県名古屋市瑞穂区須田町 2 番 5 6 号 日本碍子株式会社内  
    【氏名】 日高 道孝  
【発明者】  
    【住所又は居所】 愛知県名古屋市瑞穂区須田町 2 番 5 6 号 日本碍子株式会社内  
    【氏名】 本多 俊彦  
【特許出願人】  
    【識別番号】 000004064  
    【氏名又は名称】 日本碍子株式会社  
【代理人】  
    【識別番号】 100088616  
    【弁理士】  
    【氏名又は名称】 渡邊 一平  
【手数料の表示】  
    【予納台帳番号】 009689  
    【納付金額】 21,000円  
【提出物件の目録】  
    【物件名】 特許請求の範囲 1  
    【物件名】 明細書 1  
    【物件名】 図面 1  
    【物件名】 要約書 1  
    【包括委任状番号】 9001231

**【書類名】 特許請求の範囲****【請求項 1】**

燃焼手段にメタンを含む燃料を流入させて燃焼させることにより燃焼ガスを発生させ、前記燃焼手段で発生した前記燃焼ガスを焼成炉本体の内部に導入し、前記燃焼ガスにより、その内部に搬入された被焼成体を加熱して焼成するとともに、焼成後の前記燃焼ガスを二酸化炭素を含む燃焼排ガスとして前記焼成炉本体の外部に排出させ、前記燃焼排ガス中の前記二酸化炭素含有量を低減させることが可能な燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法であって、

内部にメタン改質触媒が充填されたメタン改質器に、メタンを主成分とする改質用メタン副燃料及び水蒸気からなる改質原料を流入させ、前記改質原料を前記燃焼排ガスにより加熱しながら前記メタン改質触媒に接触させることにより前記改質原料の中の前記メタンと前記水蒸気とを反応させて水素及び二酸化炭素を含有する改質ガスを生成させ、前記メタン改質器で生成した前記改質ガスを水素分離器の内部に流入させて前記改質ガスの中の前記水素を選択的に分離して水素を主成分とする水素燃料と二酸化炭素を含有する残留ガスとに分離させ、

前記水素分離器で分離された前記残留ガスを、水酸化ナトリウムを含有する二酸化炭素固定化剤をその内部に有する炭酸ナトリウム生成器内に流入させ、前記二酸化炭素固定化剤に含有される前記水酸化ナトリウムと、流入した前記残留ガスに含有される二酸化炭素とを反応させて炭酸ナトリウムを生成させ、生成した前記炭酸ナトリウムを含有する溶液を炭酸ナトリウム含有溶液として前記炭酸ナトリウム生成器から排出し、前記燃焼手段に、メタンを主成分とする混合用メタン主燃料と前記水素分離器で分離された前記水素燃料との混合燃料を流入、燃焼させて燃焼ガスを発生させることにより、前記燃焼排ガス中の二酸化炭素含有量を低減させることが可能な燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法。

**【請求項 2】**

前記炭酸ナトリウム生成器から排出される前記炭酸ナトリウム含有溶液に含有される前記炭酸ナトリウムの、前記炭酸ナトリウム含有溶液から水を除いた残りの物質に対する含有率が、80～99.9質量%である請求項1に記載の燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法。

**【請求項 3】**

前記改質用メタン副燃料中の前記メタンの含有率が、50～100質量%である請求項1又は2に記載の燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法。

**【請求項 4】**

前記残留ガス中の二酸化炭素の含有率が、15～99.9質量%である請求項1～3のいずれかに記載の燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法。

**【請求項 5】**

前記炭酸ナトリウム生成器の内部に入れる前記二酸化炭素固定化剤中の前記水酸化ナトリウムの、前記二酸化炭素固定化剤から水を除いた残りの物質に対する含有率が、80～99.9質量%である請求項1～4のいずれかに記載の燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法。

**【請求項 6】**

前記改質用メタン副燃料と前記混合用メタン主燃料とを、その体積比（改質用メタン副燃料：混合用メタン主燃料）が5：95～100：0となるように用いる請求項1～5のいずれかに記載の燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法。

**【請求項 7】**

前記焼成炉本体として、前記被焼成体を連続的にその内部に搬入し、前記被焼成体を内部で加熱した後に連続的にその外部に搬出する連続式焼成炉本体を用いる請求項1～6のいずれかに記載の燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法。

**【請求項 8】**

前記改質用メタン副燃料及び前記混合用メタン主燃料の中の少なくとも一方として、液化

天然ガス（LNG）を用いる請求項 1 ～ 7 のいずれかに記載の燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法。

【請求項 9】

前記被焼成体として、セラミックを用いる請求項 1 ～ 8 のいずれかに記載の燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法。

【請求項 1 0】

前記被焼成体として、ハニカム構造体を用いる請求項 1 ～ 9 のいずれかに記載の燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法。

## 【書類名】 明細書

## 【発明の名称】 燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は、燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法に関し、さらに詳しくは、メタンを含む燃料を燃焼させることによって得られる二酸化炭素を含有する燃焼ガスを燃焼排ガスとして排出するときの、燃焼排ガス中の含有二酸化炭素量を大幅に削減するとともに燃料コストを削減し、さらに高純度の炭酸ナトリウムを生成させることが可能な燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法に関する。

## 【背景技術】

## 【0002】

従来、種々の工業分野で被加熱体を加熱する装置として、工業炉が使用されている。この工業炉の中でも炭素を含有する燃料を燃焼させることにより被加熱体を加熱するものは、燃料の燃焼により発熱と同時に二酸化炭素を含有する排ガス（燃焼排ガス）を発生させるものである。このような二酸化炭素発生の問題は、近年特に、地球温暖化の問題等によりクローズアップされており、工業炉からの排ガスに含有される二酸化炭素の量を削減することが強く要請されるようになってきた。

## 【0003】

これに対し、比較的規模の小さい工業炉である、セラミック等を焼成する焼成炉については、これまで、二酸化炭素の排出量を削減させるための方策はあまり採られておらず、被加熱体（被焼成体）の加熱に使用した、二酸化炭素を含有する燃焼ガスをそのまま排ガスとして大気に出していた。一方、例えば、焼成炉本体から出た排ガスを再度焼成炉本体に戻すことにより、排ガスの熱エネルギーを回収しようとする方法が提案されているが（例えば、特許文献1参照）、この方法によると、排ガスの熱エネルギーの一部が回収されるため、使用燃料の総量が削減され、それにより発生する二酸化炭素量も削減されることになるが、その削減量としてはあまり大きいものではなかった。

【特許文献1】 特開 2002-340482号公報

## 【発明の開示】

## 【発明が解決しようとする課題】

## 【0004】

本発明は、上述の問題に鑑みなされたものであり、炭素を含む燃料、特にメタンを含む燃料を燃焼させることによって得られる二酸化炭素を含有する燃焼ガスを、燃焼排ガスとして排出するときの、燃焼排ガス中の含有二酸化炭素量を大幅に削減するとともに燃料コストを削減し、さらに高純度の炭酸ナトリウムを生成させることが可能な燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法を提供することを目的とする。

## 【課題を解決するための手段】

## 【0005】

上記目的を達成するため、本発明によって以下の燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法が提供される。

## 【0006】

[1] 燃焼手段にメタンを含む燃料を流入させて燃焼させることにより燃焼ガスを発生させ、前記燃焼手段で発生した前記燃焼ガスを焼成炉本体の内部に導入し、前記燃焼ガスにより、その内部に搬入された被焼成体を加熱して焼成するとともに、焼成後の前記燃焼ガスを二酸化炭素を含む燃焼排ガスとして前記焼成炉本体の外部に排出させ、前記燃焼排ガス中の前記二酸化炭素含有量を低減させることが可能な燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法であって、内部にメタン改質触媒が充填されたメタン改質器に、メタンを主成分とする改質用メタン副燃料及び水蒸気からなる改質原料を流入させ、前記改質原料を前記燃焼排ガスにより加熱しながら前記メタン改質触媒に接触させることにより前記改質原料の中の前記メタンと前記水蒸気とを反応させて水素及び二酸化炭素を含有する改質ガスを生成させ、前記メタン改質器で生成した前記改質ガスを水素分離器の内部に流入させて前記改質

ガスの中の前記水素を選択的に分離して水素を主成分とする水素燃料と二酸化炭素を含有する残留ガスとに分離させ、前記水素分離器で分離された前記残留ガスを、水酸化ナトリウムを含有する二酸化炭素固定化剤をその内部に有する炭酸ナトリウム生成器内に流入させ、前記二酸化炭素固定化剤に含有される前記水酸化ナトリウムと、流入した前記残留ガスに含有される二酸化炭素とを反応させて炭酸ナトリウムを生成させ、生成した前記炭酸ナトリウムを含有する溶液を炭酸ナトリウム含有溶液として前記炭酸ナトリウム生成器から排出し、前記燃焼手段に、メタンを主成分とする混合用メタン主燃料と前記水素分離器で分離された前記水素燃料との混合燃料を流入、燃焼させて燃焼ガスを発生させることにより、前記燃焼排ガス中の二酸化炭素含有量を低減させることが可能な燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法。

【0007】

〔2〕前記炭酸ナトリウム生成器から排出される前記炭酸ナトリウム含有溶液に含有される前記炭酸ナトリウムの、前記炭酸ナトリウム含有溶液から水を除いた残りの物質に対する含有率が、80～99.9質量%である〔1〕に記載の燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法。

【0008】

〔3〕前記改質用メタン副燃料中の前記メタンの含有率が、50～100質量%である〔1〕又は〔2〕に記載の燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法。

【0009】

〔4〕前記残留ガス中の二酸化炭素の含有率が、15～99.9質量%である〔1〕～〔3〕のいずれかに記載の燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法。

【0010】

〔5〕前記炭酸ナトリウム生成器の内部に入れてある前記二酸化炭素固定化剤中の水酸化ナトリウムの、前記二酸化炭素固定化剤から水を除いた残りの物質に対する含有率が、80～99.9質量%である〔1〕～〔4〕のいずれかに記載の燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法。

【0011】

〔6〕前記改質用メタン副燃料と前記混合用メタン主燃料とを、その体積比（改質用メタン副燃料：混合用メタン主燃料）が5：95～100：0となるように用いる〔1〕～〔5〕のいずれかに記載の燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法。

【0012】

〔7〕前記焼成炉本体として、前記被焼成体を連続的にその内部に搬入し、前記被焼成体を内部で加熱した後に連続的にその外部に搬出する連続式焼成炉本体を用いる〔1〕～〔6〕のいずれかに記載の燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法。

【0013】

〔8〕前記改質用メタン副燃料及び前記混合用メタン主燃料の中の少なくとも一方として、液化天然ガス（LNG）を用いる〔1〕～〔7〕のいずれかに記載の燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法。

【0014】

〔9〕前記被焼成体として、セラミックを用いる〔1〕～〔8〕のいずれかに記載の燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法。

【0015】

〔10〕前記被焼成体として、ハニカム構造体を用いる〔1〕～〔9〕のいずれかに記載の燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法。

【発明の効果】

【0016】

本発明の燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法によると、燃焼手段で燃焼させるメタンを含む燃料として、メタンを主成分とする混合用メタン主燃料と、メタンを主成分とする改質用メタン副燃料と水蒸気とからなる改質原料をメタン改質触媒により反応させて得られる水素の混合燃料を使用するようにしたため、燃焼排ガス中の二酸化炭素含有量を大幅に低

減することができる。また、上記改質原料をメタン改質触媒で反応させて生成する改質ガスから水素を除いた残留ガスは二酸化炭素の純度が高いため、炭酸ナトリウム生成器内で残留ガス中の高純度の二酸化炭素と水酸化ナトリウムとを反応させて高純度の炭酸ナトリウムを生成させることができる。そして、改質原料から生成する二酸化炭素がガスの状態で外部に放出されることはない。ここで水酸化ナトリウムと反応して炭酸ナトリウムとなることにより固定された二酸化炭素が、上記燃焼排ガス中の二酸化炭素における低減された二酸化炭素に相当することになる。さらに、上記改質原料をメタン改質触媒で反応させるときの吸熱反応に必要な熱として、焼成炉本体から排出される燃焼排ガスの熱を使用するため、燃焼排ガスの排熱の一部をメタン改質反応に必要な熱として回収することになり、燃料の総使用量を削減し、燃料コストを削減することができる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0017】

以下、本発明の実施の形態を図面を参照しながら具体的に説明するが、本発明は以下の実施の形態に限定されるものではなく、本発明の趣旨を逸脱しない範囲で、当業者の通常の知識に基づいて、適宜設計の変更、改良等が加えられることが理解されるべきである。

【0018】

図1は、本発明の燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法の一の実施の形態において使用される焼成炉を構成する各機器及び各物質の移動を模式的に示すブロックフロー図である。図1において矢印は、各燃料、燃焼排ガス、水蒸気、その他の物質等の移動する状態を示している。

【0019】

本実施の形態の燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法は、図1に示すような焼成炉100を使用して実施することができる。図1に示す焼成炉100は、メタンを含む燃料11を燃焼させて燃焼ガスを発生させる燃焼手段2と、燃焼ガスにより、その内部に搬入された被焼成体を加熱して焼成するとともに、焼成後の燃焼ガスを二酸化炭素を含む燃焼排ガス12として外部に排出させる焼成炉本体1とを備え、さらに、内部にメタン改質触媒6が充填され、そこに流入したメタンを主成分とする改質用メタン副燃料21及び水蒸気22からなる改質原料23を、燃焼排ガス12により加熱しながらメタン改質触媒6に接触させることにより改質原料23の中のメタンと水蒸気22とを反応させて水素及び二酸化炭素からなる改質ガス24を生成させる（メタン水蒸気改質反応をさせる）メタン改質器3と、メタン改質器3で生成した改質ガス24を内部に流入させて改質ガス24の中の水素を選択的に分離して水素を主成分とする水素燃料25と二酸化炭素を含有する残留ガス26とに分離させる水素分離器4と、水素分離器4で分離された残留ガス26の中の二酸化炭素を、水酸化ナトリウムを含有する二酸化炭素固定化剤（以下、「固定化剤」と記載することがある）を内部に有し、二酸化炭素と水酸化ナトリウムとを反応させて炭酸ナトリウムを生成させ、二酸化炭素をガスの状態で外部に放出されないように固定化させる炭酸ナトリウム生成器5を備えてなるものである。焼成炉100を構成する各機器間は、所定の配管で繋がれ、各燃料、水蒸気、その他の物質等は、その配管内を流れて移動するように形成されている。尚、本実施の形態の燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法に使用される焼成炉は、図1に示すような焼成炉100に限定されるものではない。

【0020】

本実施の形態の燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法は、上述のような、図1に示す焼成炉100を使用して、メタン改質器3に改質用メタン副燃料21及び水蒸気22からなる改質原料23を流入させ、改質原料23を燃焼排ガス12により加熱しながらメタン改質触媒6に接触させることにより改質原料23の中のメタンと水蒸気22とを反応させて水素及び二酸化炭素を含有する改質ガス24を生成させる。そして、メタン改質器3で生成した改質ガス24を水素分離器4の内部に流入させて改質ガス24中の水素を選択的に分離して水素燃料25と残留ガス26とに分離させる。そして、水素分離器4で分離された残留ガス26を炭酸ナトリウム生成器5内に流入させ、固定化剤41に含有される水酸化ナトリウムと、残留ガス26に含有される二酸化炭素とを反応させて炭酸ナトリウムを生成

させ、生成した炭酸ナトリウムを含有する溶液を炭酸ナトリウム含有溶液 42 として炭酸ナトリウム生成器 5 から排出する。そして、メタンを主成分とする混合用メタン主燃料 31 と水素分離器 4 で分離された水素燃料 25 とを混合させて混合燃料 32 とし、混合燃料 32 を燃焼手段 2 に流入させ、そこで混合燃料 32 を燃焼させて燃焼ガスを発生させる。そして、その燃焼ガスを焼成炉本体 1 の内部に導入し、導入された燃焼ガスにより、その内部に搬入された被焼成体を加熱して焼成するとともに、焼成後の燃焼ガスを二酸化炭素を含む燃焼排ガス 12 として焼成炉本体 1 の外部に排出させることにより、燃焼排ガス 12 中の二酸化炭素含有量を低減させることを可能にするものである。

#### 【0021】

このように、本実施の形態の燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法によると、燃焼手段 2 で燃焼させるメタンを含む燃料 11 として、メタンを主成分とする混合用メタン主燃料 31 と、水素燃料 25 との混合燃料 32 を使用するようにしたため、混合燃料 32 (燃料 11) が、燃焼させても二酸化炭素が発生しない水素 (水素燃料 25) を含有する分だけ、燃焼排ガス 12 に含有される二酸化炭素の量を低減させることができる。これにより、燃焼排ガス 12 をメタン改質器 3 で使用した後に、改質器排ガス 43 として外部に排出するときの、外部に排出される二酸化炭素の量を低減させることができる。ここで、上述の「メタンを主成分とする改質用メタン副燃料 21」及び「メタンを主成分とする混合用メタン主燃料 31」における、「メタンを主成分とする」とは、メタンの含有率が 80 (体積%) 以上であることをいう。また、混合燃料 32 に含まれる水素の含有率 (水素/混合燃料) は、5~95 (体積%) が好ましく、25~75 (体積%) がさらに好ましい。5 (体積%) より少ないと、二酸化炭素低減効果が十分でないことがあり、95 (体積%) より多いときは、メタン改質反応を行うときに、燃焼排ガスだけではなく、他にも熱源を必要とすることがある。

#### 【0022】

また、上記改質原料 23 をメタン改質触媒 6 で反応させて生成する改質ガス 24 から水素を除いた残留ガス 26 は二酸化炭素の純度が高いため、炭酸ナトリウム生成器 5 内で、残留ガス 26 中の二酸化炭素と水酸化ナトリウムとを反応させて炭酸ナトリウムを生成させ、この炭酸ナトリウムを含有する炭酸ナトリウム含有溶液を精製することにより、高純度炭酸ナトリウムを得ることができる。そして、改質原料 23 から生成する二酸化炭素がガスの状態で外部に放出されることはない。

#### 【0023】

さらに、上記改質原料 23 をメタン改質触媒 6 で反応させるときの吸熱反応に必要な熱として、焼成炉本体 1 から排出される燃焼排ガス 12 の熱を使用するため、燃焼排ガス 12 の排熱の一部をメタン改質反応に必要な熱として回収することになり、燃料の総使用量を削減することができる。このように、燃料の総使用量を削減することによっても、二酸化炭素の排出量を削減することができる。ここで、メタン水蒸気改質のための熱源は燃焼ガス以外にも炉壁からの放熱やセラミック焼成時に用いる窯道具を冷却するときに廃棄される熱を使うことができる。

#### 【0024】

図 1 に示す、本実施の形態の燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法で使用する焼成炉 100 において、焼成炉本体 1 は特に限定されるものではなく、被焼成体としてセラミック等を内部に搬入させ、燃焼手段 2 によりメタンを含む燃料 11 を燃焼させて発生させる燃焼ガスにより、セラミック等の被焼成体を焼成する、通常使用されるものでよい。被焼成体としては、食器・タイル・衛生陶器・ガイシなどのセラミック、さらにはセラミックハニカム構造体を好適に焼成することができる。ここで、セラミックハニカム構造体とは、セラミック製の、隔壁によって区画された流体の流路となる複数のセルを有するハニカム構造の構造体である。また、焼成炉本体 1 は、所定量の被焼成体を 1 回の焼成の単位として、1 回ずつ断続的に焼成するバッチ式であってもよいが、セラミックハニカム構造体等の被焼成体をコンベア等により連続的にその内部に搬入し、その被焼成体を内部で加熱、焼成した後に連続的にその外部に搬出する連続式の焼成炉本体 1 であることが好ましい。連続

的に焼成を行うことにより、定常的に安定して焼成炉本体 1 から燃烧排ガス 12 を排出することができるため、メタン改質器 3 において、燃烧排ガス 12 の熱によりメタン改質反応を安定して行うことができ、それにより水素燃料 25 を安定して供給することができ、水素燃料 25 と混合用メタン主燃料とを混合させることにより得られる混合燃料 32 を安定して燃烧手段 2 に供給することができる。

#### 【0025】

図 1 に示す本実施の形態の燃烧排ガス中の二酸化炭素低減方法で使用する焼成炉 100 において、燃烧手段 2 は、メタン及び水素を含有する燃料を効率的に燃烧させることができるものであれば特に限定されるものではない。燃烧手段 2 を、焼成炉本体 1 の外部に配設し、配管により燃烧ガスを焼成炉本体 1 内に流入させるようにしてもよいが、焼成炉本体 1 の内部に配設してもよい。また、燃烧手段 2 を、その能力や燃烧炉本体 1 の大きさ等により、焼成炉本体 1 に一つだけ配設してもよいし、複数配設してもよい。燃烧手段 2 としては、空気と燃料ガスを導入するラインを有するバーナーであれば、特にその形式は問わない。燃烧用の空気を予加熱するリジェネ形式バーナー等も好適に用いることができる。

#### 【0026】

図 1 に示す本実施の形態の燃烧排ガス中の二酸化炭素低減方法で使用する焼成炉 100 において、メタン改質器 3 は、クロム－ニッケル系合金等からなる容器の内部にメタン改質触媒 6 が充填されたものであり、そこにメタンを主成分とする改質用メタン副燃料 21 及び水蒸気 22 からなる改質原料 23 を流入させ、燃烧排ガス 12 により加熱しながらメタン改質触媒 6 に接触させることにより、改質原料 23 中のメタンと水蒸気 22 とを反応させて水素及び二酸化炭素からなる改質ガス 24 を生成させる（メタン改質反応をさせる）。本実施の形態で用いられるメタン改質器 3 としては、メタンを反応させて水素を得ることができ、さらにメタン中の炭素を最終的には外部に放出することなく固定化することができるものであればよい。また、副生物として一酸化炭素を生成することがあるが、一酸化炭素の生成量はできるだけ少ないことが好ましい。メタン中の炭素の固定化はメタン改質器 3 の後の工程で行われても良く、本実施の形態においては炭酸ナトリウム生成器 5 において二酸化炭素を固定することがこれに相当する。メタン改質器 3 におけるメタンと水の反応率（投入した原料（メタンと水）に対して、発生すべき水素の量の理論値に対する実際に発生した水素の量の比率）は 50（モル％）以上であることが好ましい。50（モル％）より低いと燃料の使用量が多くなることがある。また、メタンと水との反応率は高いほど好ましい。メタン改質触媒 6 を充填する容器の形状は、特に限定されるものではなく、筒状、箱形等のいずれの形状でもよい。

#### 【0027】

メタン改質器 3 の具体例としては、例えば、「ICI 法」と呼ばれる、メタン（1 モル）と水（2 モル）とを、ニッケル含有触媒下で温度 700～950（℃）、圧力  $1.01 \times 10^5 \sim 40.52 \times 10^5$ （N/m<sup>2</sup>）の条件で吸熱反応させて、水素（4 モル）と二酸化炭素（1 モル）とを生成させる方法を利用したものを好適に使用することができる。ニッケル含有触媒としては、例えば、ジョンソンマッセイ社製の Syntex 触媒などを好適に使用することができる。さらに、有効な触媒としては、Ni 系、Cu 系、遷移金属系、白金系などを挙げることができる。

#### 【0028】

メタン改質器 3 において、メタンから水素を生成させる反応は吸熱反応であるため、加熱しながら反応させる必要がある。本実施の形態においては、この加熱を焼成炉本体 1 から排出される燃烧排ガス 12 により行っている。そのため、新たに熱を発生させることなく、燃烧排ガス 12 の有する熱を有効に回収することができる。これにより、燃料の総使用量を削減することができ、エネルギー資源を効率的に活用ことができ、さらに燃料の使用量が削減されることにより、発生する二酸化炭素の量も削減させることができる。ここで、燃烧排ガス 12 の温度は 200～1000（℃）が好ましい。200（℃）より低いとメタンと水蒸気とを反応させにくくなることがあり、1000（℃）より高いと反応装置を構成する部材の耐久性が低下することがある。また、燃烧排ガス 12 の有する熱量

は、焼成炉本体 1 の種類、大きさ等によって異なるため特に限定されるものではない。

#### 【0029】

メタン改質器 3 において反応させる改質原料 2 3 を構成するメタンを主成分とする改質用メタン副燃料 2 1 に含有されるメタンの、改質用メタン副燃料 2 1 に対する含有率は、50～100 質量%であることが好ましく、80～100 質量%であることがさらに好ましい。50 質量%より低いと、改質ガス 2 4 中の不純物が多くなるため、炭酸ナトリウム生成器 5 から排出される炭酸ナトリウム含有溶液 4 2 を精製して取り出す炭酸ナトリウムの純度を高くし難いことがある。

#### 【0030】

図 1 に示す本実施の形態の燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法で使用する焼成炉 100 において、水素分離器 4 は、メタン改質器 3 で生成した水素と二酸化炭素とを含有する改質ガス 2 4 を内部に流入させて改質ガス 2 4 中の水素を選択的に分離して水素を主成分とする水素燃料 2 5 と二酸化炭素を含有する残留ガス 2 6 とに分離させるものである。水素分離器 4 は、水素を含有する混合ガスから水素を選択的に分離できるものであれば特に限定されるものではなく、例えば、パラジウム又はパラジウムを含有する合金を膜状に形成したもの（水素分離膜）を筒状に形成し、その水素分離膜をステンレス等からなる筒状の容器内に配設し、水素分離膜の筒の内部側の空間と外周側の空間とが繋がらないように形成し、筒状の容器内に水素を含有する混合ガスを流入させ、それを水素分離膜の筒の内部側に導入し、水素だけを選択的に水素分離膜の内部側から外周側へ透過させ、水素分離膜の筒の外周側に流出した水素を筒状の容器の外部に流出させ、その他のガスは残留ガス 2 6 として水素分離膜の筒の内部をそのまま通過させて筒状の容器の外部に流出させるように構成したものを好適に使用することができる。水素を含有する混合ガスは、水素分離膜の筒の外側に導入し、水素を水素分離膜の筒の内部側に流出するようにしてもよい。ここで、分離された水素は水素を主成分とする水素燃料 2 5 として使用し、その他の二酸化炭素を含有する残留ガス 2 6 は、炭酸ナトリウム生成器 5 に送る。上記水素を主成分とする水素燃料 2 5 の「水素を主成分とする」とは、水素の含有率が 50（体積%）以上であることをいう。また、上記筒状の容器は筒状である必要はなく、内部に空間を有する形状であれば、例えば箱型等でもよい。水素分離膜は、その機械的強度を向上させるために、セラミック等からなる多孔質体の表面や内部に配設されるように形成されてもよい。また、水素分離膜は、筒状である必要はなく、平面状やその他いずれの形状であってもよい。

#### 【0031】

水素分離器 4 を、メタン改質器 3 と一体化して形成し、メタン改質器 3 において発生した水素を、メタン改質器 3 内に配設された水素分離器 4 により選択的に分離し、メタン改質器 3 からその水素を流出させて水素燃料 2 5 として使用してもよい。水素分離器 4 をメタン改質器 3 に配設する方法としては、例えば、筒状に形成した水素分離膜をメタン改質器 3 内に配設し、その筒の内部にメタン改質触媒 6 を配設することができる。この場合、水素分離膜が水素分離器 4 として機能し、水素分離器 4 をメタン改質器 3 内に配設したことになる。それにより、水素分離膜の筒の内部に改質原料 2 3 を導入し、水素分離膜の筒の内部に配設されたメタン改質触媒 6 により、水素を発生させ、発生した水素を水素分離膜の筒の外周側に流出させることができる。そして流出した水素を水素燃料 2 5 として使用することができる。

#### 【0032】

水素分離器 4 により改質ガス 2 4 から水素を分離するときの水素の分離効率としては、「改質ガス 2 4 中の水素の量」に対する「分離された水素燃料 2 5 中の水素の量」の比率が 50～99（体積%）であることが好ましい。50（体積%）より低いと、効率的に燃料を使用することができないことがある。分離効率としては、高いほど好ましいが、99（体積%）であれば燃焼用水素の回収効率としては十分であり、これより高い分離効率を実現するためには、コストが高くなることがある。

#### 【0033】

水素分離器 4 により改質ガス 2 4 から水素を分離した後の残留ガス 2 6 中の二酸化炭素含

有率が、15～99.9質量%であることが好ましく、60質量%以上であることがさらに好ましい。15質量%より低いと、残留ガス26中の不純物が多くなるため、炭酸ナトリウム生成器5から排出される炭酸ナトリウム含有溶液42を精製して取り出す炭酸ナトリウムの純度を高くし難いことがある。また、残留ガス26中の二酸化炭素含有率が低い場合又は残留ガス26中の二酸化炭素含有率をより高くしたい場合には、変成器を設置してもよい。この場合、水素分離器4から排出された残留ガス26を変成器に流入させ、変成されて二酸化炭素の含有率が高くなった残留ガス26を、炭酸ナトリウム生成器5に流入させる。

#### 【0034】

また、残留ガス26中にメタン改質器3で副生物として生成された一酸化炭素が多く含有されている場合には、一酸化炭素変成器を設置して、残留ガス26を一酸化炭素変成器に流入させてもよい。一酸化炭素変成器としては、その内部で350℃～360℃に調整された残留ガス26をFe-Cr系触媒に接触させることにより、一酸化炭素を変成させるものを好適に使用することができる。この場合、一酸化炭素変成器は、一酸化炭素と水とを原料として二酸化炭素と水素とを発生させる。これにより、残留ガス26中に含有された一酸化炭素が二酸化炭素に変成され、残留ガス26中の一酸化炭素含有率を低下させることができる。そして一酸化炭素含有率が低下した残留ガス26を炭酸ナトリウム生成器5に流入させることができる。一酸化炭素変成器では、二酸化炭素以外に水素も発生するため、一酸化炭素変成器から流出した残留ガス26を水素分離器に通すことにより、水素を分離し、その水素を混合燃料32に混入させて使用してもよい。このとき、水素分離器を新たに設置して、残留ガス26の全量を流入させてもよいし、残留ガス26の一部を抜き出して、改質ガス24とともに水素分離器4に流入させることにより、残留ガス26の一部を循環させるようにしてもよい。変成されて、二酸化炭素の含有率が高くなった残留ガス26（変成後、水素分離器に通すときには、水素分離器から流出した残留ガス26）は、炭酸ナトリウム生成器5に流入させる。

#### 【0035】

図1に示す本実施の形態の燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法で使用する焼成炉100において、炭酸ナトリウム生成器5は、水素分離器4で分離された残留ガス26の中の二酸化炭素をガスの状態で外部に放出されないように固定化させるとともに、二酸化炭素と水酸化ナトリウムとを反応させて炭酸ナトリウムを生成させるものである。ここで、二酸化炭素を固定化するとは、他の物質と反応させたり、他の物質に吸収させたりすることにより、二酸化炭素がガスの状態で外部に放出されないようにすることをいう。炭酸ナトリウム生成器5を使用して炭酸ナトリウムを生成させる方法としては、残留ガス26に含有される二酸化炭素と水酸化ナトリウムとを反応させて炭酸ナトリウムを生成させることができれば、特に限定されるものではないが、例えば、所定の容器の中に二酸化炭素を固定化する固定化剤41として水酸化ナトリウムの水溶液を入れておき、その中に、残留ガス26を導入し、水酸化ナトリウム水溶液を残留ガス26でバブリングするようにしながら、残留ガス26に含有される二酸化炭素を水酸化ナトリウムと反応させて炭酸ナトリウムを生成させる方法を好適に使用することができる。

#### 【0036】

炭酸ナトリウム生成器5を構成する上記容器の構造は、その内部に水酸化ナトリウムを入れておき、二酸化炭素と反応させて炭酸ナトリウムを生成させることができれば特に限定されるものではない。例えば、残留ガス及び水酸化ナトリウムを導入するための少なくとも一つの導入管、炭酸ナトリウム含有溶液を排出するための排出部を有する筒状の容器を使用することができる。容器の形状は、特に限定されるものではなく、円筒形、底面の形状が四角形等の多角形の筒（箱形を含む）、底面の形状が不定形の筒（箱形を含む）等とすることができる。また、炭酸ナトリウム生成器5には、必要により攪拌機や、加熱、冷却のためのジャケットやコイルを設けてもよい。さらに、炭酸ナトリウム生成器5としては、一つの上記容器を設けて、水酸化ナトリウムがほぼ全て反応したところで、残留ガスの流入を停止し、炭酸ナトリウム含有溶液を排出した後に、水酸化ナトリウムを容器内に

入れて再び残留ガスの流入を開始するようなバッチ式にしてもよいが、二つ以上の上記容器を設けて、一つの容器内で水酸化ナトリウムがほぼ全て反応したところで、残留ガスの流入をその容器から他の容器に切り換えて、他の容器内で炭酸ナトリウムの生成を開始し、その間に水酸化ナトリウムがほぼ全て反応した容器中の炭酸ナトリウム含有溶液の排出を行うようなセミバッチ式としてもよい。

#### 【0037】

また、二酸化炭素を固定化して炭酸ナトリウムを生成させる方法としては、固定化剤 4 1 として水酸化ナトリウム水溶液を使用し、その水酸化ナトリウム水溶液を循環させ、循環する水酸化ナトリウム水溶液中に残留ガス 2 6 を流入、混合させ、水酸化ナトリウムと二酸化炭素とを反応させるようにしてもよい。水酸化ナトリウム水溶液（炭酸ナトリウム生成後は炭酸ナトリウムも含有される）の循環方法としては、例えば、水酸化ナトリウム水溶液を容器に入れ、容器から配管を通じて排出された水酸化ナトリウム水溶液をポンプにより再びその容器に戻すようにすることができる。このとき、水酸化ナトリウム及び反応により生成した炭酸ナトリウムを含有する水溶液の循環系には、水酸化ナトリウムを連続的に送り込み、さらにこの循環系から連続的に循環する炭酸ナトリウムを含有する水溶液（炭酸ナトリウム含有溶液 4 2）を抜き出すようにして、炭酸ナトリウム生成器 5 を連続的に運転するようにしてもよい。

#### 【0038】

また、残留ガス 2 6 を上記一酸化炭素変成器で変成した後に、依然として残留ガス 2 6 中に一酸化炭素が残存する場合、又は一酸化炭素が残存する残留ガス 2 6 を一酸化炭素変成器で変成しない場合には、その残留ガス 2 6 を炭酸ナトリウム生成器 5 に流入させ、二酸化炭素を反応させた後の排ガス（炭酸ナトリウム生成器排ガス）5 1 に、残留ガス 2 6 中に残存していた一酸化炭素が含有されることになる。炭酸ナトリウム生成器排ガス 5 1 に含有される一酸化炭素を処理する方法としては、炭酸ナトリウム生成器排ガス 5 1 を混合燃料 3 2 に混入させて、燃焼手段 2 により燃焼させることが好ましい。このとき、炭酸ナトリウム生成器排ガス 5 1 に水素が含有されていた場合には、水素も燃料として燃焼手段 2 により燃焼させることになるため好ましい。

#### 【0039】

炭酸ナトリウム生成器排ガス 5 1 には、炭酸ナトリウム生成器 5 内の水酸化ナトリウムが飛散し、その飛沫が含有されることがあるため、炭酸ナトリウム生成器排ガス 5 1 を混合燃料 3 2 に混入させた場合には、含有される水酸化ナトリウムが焼成炉本体 1 内に侵入し、焼成炉本体 1 を腐食させることがある。そのため、炭酸ナトリウム生成器排ガス 5 1 を混合燃料 3 2 に混入させて燃焼させるときには、燃焼前に水酸化ナトリウムを除去することが好ましい。水酸化ナトリウムを除去するのは、炭酸ナトリウム生成器排ガス 5 1 を混合燃料 3 2 と混合させる前でも混合させた後でもよい。例えば、炭酸ナトリウム生成器排ガス 5 1 を、混合燃料 3 2 に混入させる前に、水酸化ナトリウム除去器（図示せず）に通して水酸化ナトリウムを除去することができる。水酸化ナトリウム除去器としては、水等を充填したトラップを使用することができ、配管途中に設置することが好ましい。

#### 【0040】

炭酸ナトリウム生成器 5 内で残留ガス 2 6 中の二酸化炭素が完全に反応せず、炭酸ナトリウム生成器排ガス 5 1 中に未反応の二酸化炭素が残存する場合には、炭酸ナトリウム生成器排ガス 5 1 の一部を抜き出して再び炭酸ナトリウム生成器 5 に流入させることが好ましい。これにより、残存する二酸化炭素を減少させることができる。また、炭酸ナトリウム生成器をもう一つ設け、炭酸ナトリウム生成器排ガス 5 1 をこの二つ目の炭酸ナトリウム生成器に流入させて、炭酸ナトリウムを生成させてもよい。これにより、さらに残存する二酸化炭素を減少させることができる。

#### 【0041】

上述した、残留ガス 2 6 を一酸化炭素変成器で処理する方法、炭酸ナトリウム生成器排ガス 5 1 を混合燃料 3 2 に混入させる方法、及び炭酸ナトリウム生成器排ガス 5 1 を炭酸ナトリウム生成器に流入させる方法は、残留ガス 2 6 に含有される一酸化炭素量、並びに炭

酸ナトリウム生成器排ガス 51 に含有される一酸化炭素量及び二酸化炭素量によって、いずれかの操作を単独で使用してもよいし、それぞれを最適条件になるように組み合わせて使用してもよい。

#### 【0042】

炭酸ナトリウム生成器 5 において生成させる炭酸ナトリウムは、炭酸ナトリウム含有溶液 42 として炭酸ナトリウム生成器 5 から排出された後に、炭酸ナトリウム精製工程（図示せず）において精製され、高純度の炭酸ナトリウムとして取り出されることが好ましい。そのため、炭酸ナトリウム生成器 5 内で生成する炭酸ナトリウム含有溶液 42 に含有される炭酸ナトリウムの、炭酸ナトリウム含有溶液 42 から水を除いた残りの物質に対する含有率を 80～99.9 質量%とすることが好ましく、95 質量%以上とすることがさらに好ましい。80 質量%より低いと、上記炭酸ナトリウム精製工程（図示せず）において精製されて得られる炭酸ナトリウムの純度が高くなり難くなる。

#### 【0043】

このように、精製して得られる炭酸ナトリウムを高純度にするために、炭酸ナトリウム生成器 5 で二酸化炭素と反応させる水酸化ナトリウムとして高純度のものを使用することが好ましい。つまり、炭酸ナトリウム生成器 5 の内部に入れる固定化剤 41 中の水酸化ナトリウムの、固定化剤 41 から水を除いた残りの物質（固定化剤 41 が水を含有していないときには固定化剤 41 全体）に対する含有率が、80～99.9 質量%であることが好ましく、95 質量%以上であることがさらに好ましい。80 質量%より低いと精製して得られる炭酸ナトリウムの純度が高くなり難いことがある。固定化剤 41 としては、上述のように水酸化ナトリウムの水溶液を使用してもよいが、溶解した水酸化ナトリウムを使用してもよい。また、固定化剤 41 として、水酸化ナトリウム水溶液を使用したときには、水溶液全体に対する水酸化ナトリウムの含有率は、30～95 質量%が好ましい。30 質量%より低いと、水酸化ナトリウムの濃度が低いため二酸化炭素と効率的に反応し難くなり炭酸ナトリウム生成器排ガス 51 中に残存する二酸化炭素の含有率が高くなることがある。また、95 質量%より高いと水酸化ナトリウム水溶液の粘度が高くなり、流動性が悪くなるため二酸化炭素と効率的に反応し難くなることがある。

#### 【0044】

炭酸ナトリウム生成器 5 から排出された炭酸ナトリウム含有溶液 42 を、精製工程（図示せず）で精製することにより取り出す炭酸ナトリウムの純度は、98～99.9 質量%であることが好ましく、99.0 質量%以上であることがさらに好ましい。98 質量%より高くすることにより、得られた高純度炭酸ナトリウムを、光学ガラス、医薬品等の高純度炭酸ナトリウムを原料として必要とする分野において使用することができる。炭酸ナトリウムの純度の上限としては高いほど好ましい。また、炭酸ナトリウム含有溶液 42 全体に対する炭酸ナトリウムの含有率は、60～95 質量%が好ましい。60 質量%より低いと、炭酸ナトリウムの濃度が低いため、炭酸ナトリウム結晶を効率的に生成させ難くなるがある。また、95 質量%より高いと、晶析器で炭酸ナトリウムを晶析したときに、炭酸ナトリウム結晶によるスラリー濃度が高くなるため流動性が悪くなるがある。

#### 【0045】

炭酸ナトリウム生成器 5 から排出された炭酸ナトリウム含有溶液 42 を精製する精製方法としては、炭酸ナトリウム含有溶液 42 から炭酸ナトリウム結晶を析出させ、析出した炭酸ナトリウムを母液と分離することにより炭酸ナトリウム結晶を取り出す方法が好ましい。この精製方法は、炭酸ナトリウム含有溶液 42 から炭酸ナトリウム結晶を析出させる晶析器（図示せず）と、晶析器で析出した炭酸ナトリウムの結晶を母液から分離する濾過器（図示せず）とを備える精製工程（図示せず）で行われることが好ましい。

#### 【0046】

晶析器としては、通常工業的に使用される晶析器を使用することができ、例えば、攪拌機、ジャケット、コイル等を備え、溶液を冷却することにより結晶を析出させることができる円筒状の晶析器を使用することができる。炭酸ナトリウム含有溶液 42 の温度が低温で、含有される炭酸ナトリウムの一部がすでに析出している場合は、晶析器での晶析をせず

に直接濾過器で濾過をするか、又は形式的に晶析器を経由させた後に濾過器で濾過してもよい。

#### 【0047】

濾過器としては、通常工業的に使用される、バスケット型の遠心濾過器、重力式の濾過器、減圧濾過器等を使用することができる。濾過器から排出される母液には炭酸ナトリウムが溶解されているので、さらに他の晶析器を使用してその母液をより低温にすることにより、炭酸ナトリウムを析出させて、析出した炭酸ナトリウムの結晶を濾過器で濾別してもよい。また、濾過器から排出される母液には未反応の水酸化ナトリウムが含有されているため、この水酸化ナトリウムを有効に活用するために、水酸化ナトリウムをさらに添加することにより水酸化ナトリウム濃度を調整して、炭酸ナトリウム生成器5に戻してもよい。

#### 【0048】

一般には、炭酸ナトリウムを製造する方法としては、ソルベー法により合成する方法やワイミング州のGreen River 鉱床から産出されるトロナ灰に代表される天然原料を使用して精製する方法等が知られているが、これらの方法では、炭酸ナトリウムを高純度化することが困難であり、これを高純度化しようとするすると精製コストが高くなるという問題がある。例えば、ソルベー法では、原料として塩化ナトリウムを使用するため、炭酸ナトリウムを生成させた後に塩素の除去が必要になる。この塩素の除去が不十分であると炭酸ナトリウムの純度が低くなり、塩素を十分に除去して炭酸ナトリウムを高純度化しようとするすると精製コストが高くなる。また、天然原料を使用すると、天然原料自体が多くの不純物を含んでいるため、それら不純物を除去するための精製コストが高くなる。これに対し、本実施の形態の燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法によれば、メタン改質により得られた二酸化炭素と高純度の水酸化ナトリウムとを原料とするため、精製工程を簡略化し精製コストを低くしながら高純度の炭酸ナトリウムを得ることができる。

#### 【0049】

図1に示す本実施の形態の燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法で使用する焼成炉100においては、燃焼手段2で燃焼させる燃料として、メタンを主成分とする混合用メタン主燃料31と水素分離器4で分離された水素燃料25との混合燃料32を使用する。焼成炉100の運転のスタート時は、燃焼排ガス12が定常的に排出されていない状態（燃焼排ガス12がまだ発生していない状態や徐々に増加している状態）であるため、メタン改質器3による反応を燃焼排ガス12を使用しながら行うことが困難であるため、混合燃料32を使用するのは、燃焼排ガス12が定常的に排出されるようになってからでもよい。この場合、焼成炉100の運転のスタート時には、メタンを主成分とする混合用メタン主燃料31だけで焼成を行う。また、スタート時のように燃焼排ガス12が定常的に排出されていない状態のときには、メタン改質器3に、蒸気や電気等による他の加熱装置（図示せず）を配設し、その加熱装置を使用しながらメタン改質器3を運転するようにしてもよい。

#### 【0050】

図1に示す本実施の形態の燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法で使用する焼成炉100は、焼成するときに要する熱量が100万～1億（kJ/Hr）の、セラミックを焼成する焼成炉として好適に使用することができる。

#### 【0051】

改質用メタン副燃料21と混合用メタン主燃料31との体積比（改質用メタン副燃料21：混合用メタン主燃料31）が5：95～100：0（体積比）であることが好ましい。改質用メタン副燃料21の比が5（体積比）より小さいと、二酸化炭素が十分削減されないことがある。また、混合用メタン主燃料31及び改質用メタン副燃料21の中の少なくとも一方は液化天然ガス（LNG）とすることができる。LNGとすることにより、LNGの燃焼性の良さにより効率的に燃焼させることができ、また、LNGはクリーンで安価な燃料であり、燃焼により硫黄酸化物やダスト等の有害物質を発生しないため好ましい。

#### 【0052】

次に、図1に示す本実施の形態の燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法で使用する焼成炉1

00において、混合用メタン主燃料31と水素燃料25との混合燃料32を使用して燃焼手段2で燃焼させたとき（本実施の形態）と、メタンガス（メタン含有率が100（%）のガス）だけを燃料11として使用し燃焼手段2で燃焼させたとき（比較例）との、それぞれの燃料の使用量と発生熱量との違い、及び発生する二酸化炭素の量の違いについて説明する。

#### 【0053】

例えば、改質用メタン副燃料21及び混合用メタン主燃料31としてメタンガスを使用し、メタン改質器3による反応率が100（%）（1モルのメタンと2モルの水をメタン改質器3に導入すると4モルの水素が発生する）であり、水素分離器4における水素の分離効率が100（%）である（改質ガス24に含有される水素の全てが水素分離器4で分離され、水素燃料25となる）とする。この場合、例えば、メタンガスだけを1（Nm<sup>3</sup>/Hr）使用して燃焼手段2で燃焼させたとすると、39800（kJ/Hr）の熱量が発生することになる（比較例）。これに対し、本実施の形態の一例として、混合用メタン主燃料として、メタンガスを0.5（Nm<sup>3</sup>/Hr）使用し、改質用メタン副燃料としてメタンガスを0.4（Nm<sup>3</sup>/Hr）使用したとすると、メタン改質器3から1.6（Nm<sup>3</sup>/Hr）の水素が発生し、それが水素分離器4により分離され、分離された水素が水素燃料25として上記改質用メタン副燃料（メタンガス）と混合されて混合燃料32（メタンガスが0.5（Nm<sup>3</sup>/Hr）、水素が1.6（Nm<sup>3</sup>/Hr）の混合ガス）となる。この混合燃料32を燃焼手段2で燃焼させると、メタンガス0.5（Nm<sup>3</sup>/Hr）より19900（kJ/Hr）の熱量が発生し、水素1.6（Nm<sup>3</sup>/Hr）より20480（kJ/Hr）の熱量が発生する。従って、混合燃料32を燃焼させることにより得られる熱量は40380（kJ/Hr）となる。

#### 【0054】

以上より、メタンガスだけを燃焼させると、メタンガスの使用量が1（Nm<sup>3</sup>/Hr）のときに、39800（kJ/Hr）の熱量が得られるのに対し、本実施の形態の場合には、メタンガスの総使用量（混合用メタン主燃料31と改質用メタン副燃料21との合計）が0.9（Nm<sup>3</sup>/Hr）のときに、40380（kJ/Hr）の熱量が得られることになる。また、メタンガス1モルを燃焼させたときに発生する二酸化炭素の量は1モルである（理論量）ため、上記比較例の場合、二酸化炭素の発生量が1（Nm<sup>3</sup>/Hr）となるのに対し、上記本実施の形態の一例の場合は、二酸化炭素の発生量が0.5（Nm<sup>3</sup>/Hr）となる。従って、本実施の形態と、比較例の場合とを比較すると、燃焼手段2での燃焼により発生する熱量をほぼ同等（本実施の形態のほうが若干大きい）にするために必要なメタンガスの使用量は、本実施の形態の場合が比較例の場合に対して10%削減され、さらに発生する二酸化炭素の量は、本実施の形態の場合が比較例の場合に対して50%削減されたことになる。

#### 【産業上の利用可能性】

#### 【0055】

窯業等において、セラミック等を焼成する焼成炉から排出される燃焼排ガス中の二酸化炭素を低減させ、大気中に放出される二酸化炭素量を低減するために利用することができ、さらに、光学ガラス等の高純度炭酸ナトリウムを原料として使用する分野に、高純度の炭酸ナトリウムを原料として供給することが可能となる。

#### 【図面の簡単な説明】

#### 【0056】

【図1】本発明の燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法の一の実施の形態で使用する焼成炉及び各物質の移動状態を模式的に示すブロックフロー図である。

#### 【符号の説明】

#### 【0057】

1…焼成炉本体、2…燃焼手段、3…メタン改質器、4…水素分離器、5…炭酸ナトリウム生成器、6…メタン改質触媒、11…燃料、12…燃焼排ガス、21…改質用メタン副燃料、22…水蒸気、23…改質原料、24…改質ガス、25…水素燃料、26…残留ガ

ス、3 1…混合用メタン主燃料、3 2…混合燃料、4 1…固定化剤、4 2…炭酸ナトリウム含有溶液、4 3…改質器排ガス、5 1…炭酸ナトリウム生成器排ガス、1 0 0…焼成炉。



**【書類名】 要約書****【要約】**

**【課題】** 燃料を燃焼させて発生する燃焼排ガス中の二酸化炭素量を削減し、高純度炭酸ナトリウムを生成させる燃焼排ガス中の二酸化炭素低減方法を提供する。

**【解決手段】** メタン改質器で、メタン及び水蒸気を含む改質原料 23 を燃焼排ガス 12 で加熱しながら反応させて水素及び二酸化炭素を含む改質ガス 24 とし、改質ガス 24 を水素分離器 4 で、水素が主成分の水素燃料 25 と二酸化炭素を含む残留ガス 26 とに分離させ、残留ガス 26 を水酸化ナトリウムと接触させて、残留ガス 26 中の二酸化炭素と水酸化ナトリウムとを反応させて炭酸ナトリウムを生成させ、混合用メタン主燃料 31 と水素燃料 25 との混合燃料 32 を燃焼手段 2 で燃焼させて、発生した燃焼ガスを焼成炉本体 1 に導入し、その後燃焼排ガス 12 として外部に排出させることにより、燃焼排ガス 12 中の二酸化炭素含有量を低減させる。

**【選択図】** 図 1

特願 2 0 0 3 - 3 2 5 4 0 2

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 0 0 0 0 0 4 0 6 4 ]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 8 月 2 4 日

[変更理由]

新規登録

住 所

愛知県名古屋市瑞穂区須田町 2 番 5 6 号

氏 名

日本碍子株式会社